

ВРЕМЕННАЯ ЗАВИСИМОСТЬ ЭФФЕКТА ХАНЛЕ В ИЗЛУЧЕНИИ ТРИПЛЕТНЫХ СВЯЗАННЫХ ЭКСИТОНОВ В СЕЛЕНИДЕ ГАЛЛИЯ

А. Н. Старухин, Д. К. Нельсон, В. С. Разбирин*

*Физико-технический институт им. А. Ф. Иоффе Российской академии наук
194021, Санкт-Петербург, Россия*

Поступила в редакцию 15 января 2010 г.

Методом спектроскопии с временным разрешением впервые исследована динамика магнитоиндуцированной деполаризации циркулярно поляризованного излучения ориентированных по спину триплетных связанных экситонов в одноосных кристаллах (на примере GaSe). Деполаризация излучения (эффект Ханле) обусловлена различным поведением в магнитном поле σ^+ - и σ^- -компонент излучения. Установлено, что зависимости интенсивностей σ^+ - и σ^- -компонент излучения от магнитного поля существенно меняются с течением времени жизни t возбужденных состояний, при этом вид зависимости степени поляризации экситонного излучения от магнитного поля в основных чертах сохраняется при различных t . Предложено теоретическое описание наблюдаемых эффектов.

1. ВВЕДЕНИЕ

Эффекты, вызванные изменением оптических свойств среды под действием магнитного поля, широко применяются для решения фундаментальных и прикладных задач. К числу наиболее известных магнитооптических эффектов следует отнести эффект Ханле [1]. Эффект состоит в уменьшении степени поляризации света, излучаемого объектами, при помещении их во внешнее магнитное поле вследствие зависимости интенсивности излучения (в заданном направлении и в определенной поляризации) от магнитного поля. Это явление принято интерпретировать как результат пересечения и интерференции зеемановских подуровней возбужденного состояния системы в нулевом магнитном поле. Интерес к эффекту Ханле обусловлен его высокой эффективностью в исследовании энергетической структуры и кинетики возбужденных состояний в различных атомных системах, от атомов до кристаллов [2–7].

В полупроводниках исследования эффекта Ханле получили существенный импульс после открытия явлений оптической ориентации электронов и экситонов [3]. Система ориентированных экситонов излучает циркулярно поляризованный свет, состояние которого (σ^+ или σ^-) в случае оптической ориен-

тации определяется состоянием поляризации возбуждающего света. Приложение внешнего магнитного поля \mathbf{B} , перпендикулярного направлению распространения света, приводит к уменьшению степени циркулярной поляризации экситонного излучения (эффект Ханле):

$$P_{circ}(B) = \frac{I_{\sigma^-}(B) - I_{\sigma^+}(B)}{I_{\sigma^-}(B) + I_{\sigma^+}(B)}. \quad (1)$$

Здесь $I_{\sigma^\mp}(B)$ — интенсивности компонент излучения, поляризованных соответственно по левому и правому кругу.

Деполаризация излучения ориентированных экситонов внешним магнитным полем связана с различным поведением в поле компонент излучения $I_{\sigma^\mp}(B)$. При непрерывном возбуждении зависимости интенсивностей σ^\mp -компонент излучения от магнитного поля определяются вкладами в излучение элементарных излучателей, возбужденных в различные моменты времени t , предшествующие моменту регистрации излучения:

$$I_{\sigma^\mp}(B) = \text{const} \cdot \int_0^\infty I_{\sigma^\mp}(B, t) dt. \quad (2)$$

К настоящему времени характер зависимостей $I_{\sigma^\mp}(B, t)$ и проявление эффекта Ханле в различные

*E-mail: a.starukhin@mail.ioffe.ru

моменты жизни излучающих состояний изучены мало. В данной работе на примере излучения триплетных связанных экситонов в одноосном кристалле GaSe впервые представлены результаты экспериментального исследования временной эволюции поведения σ^\mp -компонент излучения, $I_{\sigma^\mp}(B, t)$, и поляризации излучения ориентированных экситонов, $P_{circ}(B, t)$, в магнитном поле. Показано, что зависимости интенсивностей компонент излучения от магнитного поля в различные моменты жизни t связанных экситонов существенно отличаются от аналогичных зависимостей, наблюдаемых в условиях стационарного возбуждения, тогда как зависимость степени циркулярной поляризации излучения от магнитного поля в различные моменты времени t сохраняет основные черты, характерные для сигнала Ханле при непрерывном возбуждении кристалла.

2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

Возбуждение экситонной люминесценции кристаллов осуществлялось циркулярно поляризованным (σ^+) излучением импульсного перестраиваемого по длине волны лазера на красителе (родамин 6G) с длительностью импульсов $\tau_p = 20$ нс и частотой повторения 10 кГц. Плотность возбуждения в импульсе составляла около 100 Вт/см^2 . Возбуждающий свет с энергией фотонов $h\nu_{exc} = E_{FE} = 2.108 \text{ эВ}$ (E_{FE} — энергия образования прямого свободного триплетного экситона в состоянии с $n = 1$ в кристалле GaSe) падал под малым углом к нормали ($\mathbf{n} \parallel z$) к поверхности образца. Излучение регистрировалось в направлении нормали, параллельно оптической оси кристалла c (геометрия «на отражение»). Спектральная ширина полосы возбуждения составляла около 1 мэВ. Для регистрации спектров использовался дифракционный спектрометр, снабженный устройством счета фотонов с временным разрешением около 30 нс. Интегральный по времени спектр был измерен традиционным методом счета фотонов без временного разрешения с использованием того же импульсного лазера. В каждом случае проверялась линейность отклика системы регистрации на изменение интенсивности излучения, падающего на входную щель спектрометра. Для получения магнитных полей применялся сверхпроводящий соленоид. Во время эксперимента образцы находились в жидком гелии при температуре 2 К.

Спектр излучения кристалла GaSe в области края фундаментального поглощения при непрерыв-

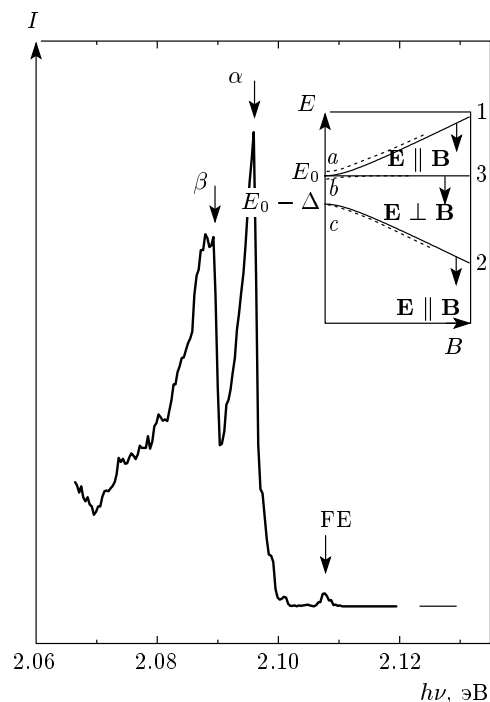


Рис. 1. Спектр излучения кристалла GaSe; $T = 2 \text{ К}$. На вставке: схема энергетических уровней триплетного экситона в GaSe в магнитном поле $\mathbf{B} \perp c$ при $V = 0$ (сплошные линии) и $V \neq 0$ (пунктир) (см. текст)

ном возбуждении светом с энергией фотонов $h\nu_{exc} > E_g$, где E_g — ширина запрещенной зоны, приведен на рис. 1. Наиболее коротковолновая линия спектра (FE) с максимумом вблизи $h\nu = 2.108 \text{ эВ}$ обусловлена излучательной аннигиляцией прямых свободных триплетных экситонов, а линии α и β с максимумами при 2.096 эВ и 2.089 эВ отвечают излучению прямых триплетных экситонов, связанных на ионизированных центрах (или изоэлектронных ловушках) [8].

При возбуждении кристалла светом с $h\nu_{exc} = E_{FE}$ спектр излучения связанных экситонов α и β сохраняет вид, приведенный на рис. 1. При возбуждении кристалла на частоте перехода в основное состояние прямого триплетного свободного экситона на распределение триплетных связанных экситонов α и β по различным спиновым состояниям оказывается близким к тому, что возникает при возбуждении светом в кристалле непосредственно связанных экситонов [8]. Эта особенность связанных экситонов α и β позволяет исследовать эффекты резонансного возбуждения в излучении связанных экситонов при резонансном возбуждении светом свободных экситонов в состоянии с $n = 1$.

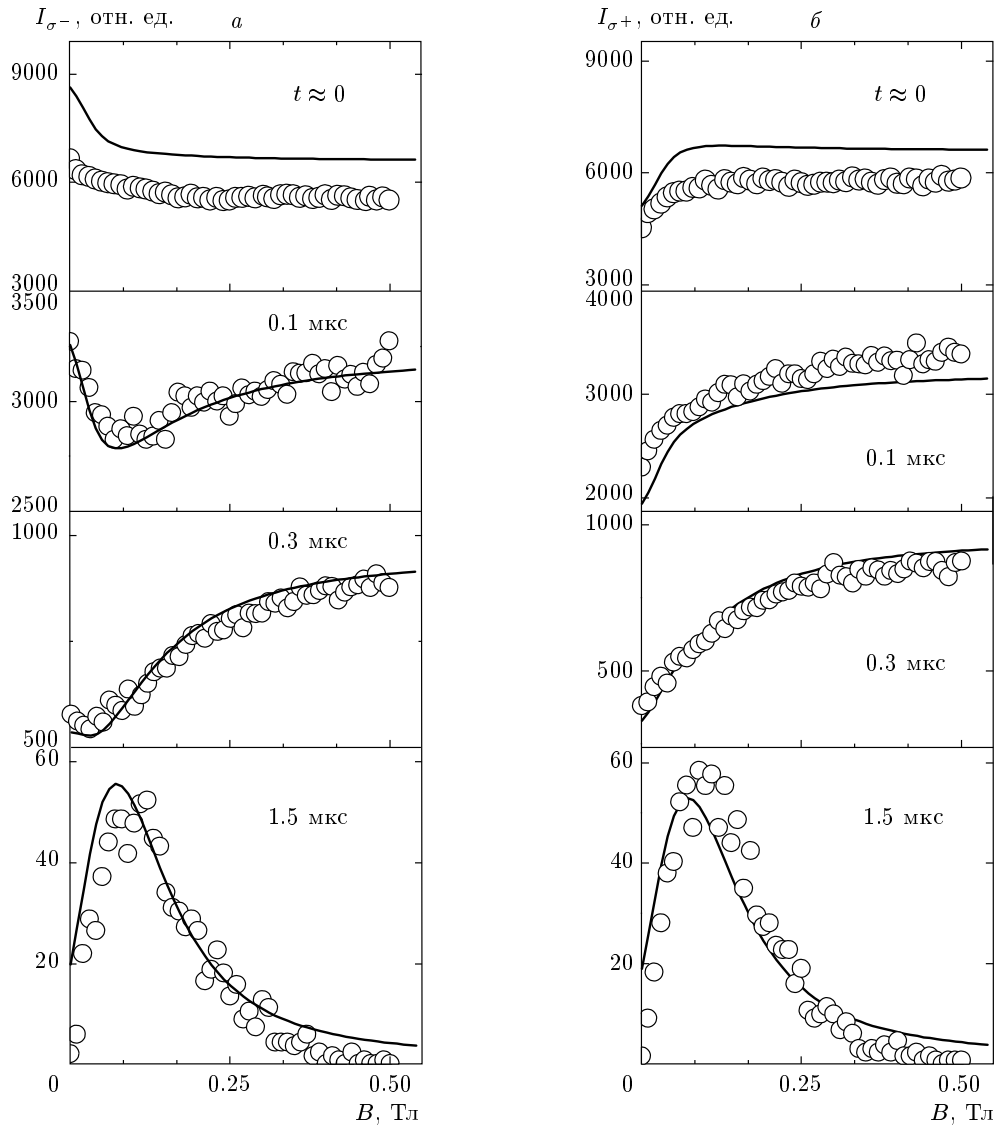


Рис. 2. Зависимости интенсивностей компонент σ^- (а) и σ^+ (б) излучения триплетного связанного экситона β от магнитного поля в различные моменты времени жизни t экситонов при возбуждении циркулярно поляризованным (σ^+) светом с $h\nu_{exc} = E_{FE}$. Время t указано на рисунке. Точки — экспериментальные данные, сплошные линии — расчетные зависимости; $T = 2$ К

В условиях стационарного возбуждения кристалла циркулярно поляризованным светом излучение связанных экситонов оказывается также циркулярно поляризованным, что указывает на оптическую ориентацию в системе связанных экситонов. (В соответствии с выражением (2) интегрированное по времени излучение фактически отвечает случаю стационарного возбуждения, что подтверждается экспериментом.) При возбуждении связанных экситонов светом с $h\nu_{exc} = E_{FE}$ степень поляризации из-

лучения в отсутствие внешнего магнитного поля составляет $P_{circ}(0) \approx 0.2$. Отметим, что в этих же условиях степень циркулярной поляризации излучения свободных триплетных экситонов в GaSe близка к единице. Поперечное магнитное поле ($\mathbf{B} \perp c$, $\mathbf{B} \perp \mathbf{k}_{photon}$ — геометрия Фойгта) приводит к деполаризации экситонного излучения, при этом интенсивность σ^- -компоненты в поле монотонно уменьшается, а интенсивность σ^+ -компоненты возрастает.

Поскольку характер магнитооптических эффек-

тов на линиях α и β аналогичен, в дальнейшем при описании временных зависимостей этих эффектов ограничимся рассмотрением поведения линии β .

2.1. σ^- -компонента излучения

На рис. 2а представлены зависимости интенсивности линии излучения β в σ^- -поляризации от магнитного поля в различные моменты времени t после окончания возбуждающего импульса, $I_{\sigma^-}(B, t)$. Интервал времени, в течение которого проводилась регистрация (ширина импульса ворот), составлял $\Delta t = 30$ нс.

При $t \approx 0$ интенсивность σ^- -компоненты в поле монотонно убывает примерно на 15% с ростом магнитного поля от 0 до 0.2 Тл и при дальнейшем увеличении поля практически не меняется (рис. 2а). С увеличением t поведение интенсивности σ^- -компоненты в поле меняется: она вначале уменьшается, достигает минимума, а затем вновь растет (рис. 2а, $t = 0.1$ мкс). При дальнейшем увеличении времени задержки относительная глубина минимума быстро уменьшается, а сам он смещается в сторону меньших полей (рис. 2а, $t = 0.3$ мкс), так что уже при $t = 0.4$ мкс во всей области полей наблюдается монотонный рост величины $I_{\sigma^-}(B, t)$. При $t > 0.5$ мкс увеличение $I_{\sigma^-}(B, t)$ в области $B > 0.2$ Тл сменяется спадом и в зависимости $I_{\sigma^-}(B, t)$ формируется широкий пик, максимум которого смещается в сторону малых полей с увеличением t . Ширина пика при этом уменьшается (рис. 2а, $t = 1.5$ мкс).

2.2. σ^+ -компонента излучения

При $t \approx 0$ интенсивность σ^+ -компоненты в поле монотонно увеличивается примерно на 25% с ростом магнитного поля от 0 до 0.2 Тл и при дальнейшем увеличении поля почти не меняется (рис. 2б). С увеличением t область монотонного роста $I_{\sigma^+}(B, t)$ увеличивается (рис. 2б, $t = 0.1, 0.3$ мкс). При $t > 0.5$ мкс поведение компоненты излучения $I_{\sigma^+}(B, t)$ в магнитном поле почти не отличается от поведения компоненты $I_{\sigma^-}(B, t)$: в зависимости $I_{\sigma^+}(B, t)$ формируется пик, максимум которого смещается в сторону малых полей с увеличением t (рис. 2б, $t = 1.5$ мкс).

2.3. Поляризация излучения

В условиях поляризованной накачки излучение связанных экситонов оказывается также циркуляр-

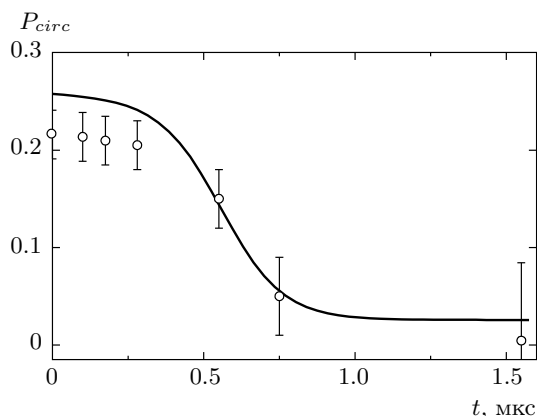


Рис. 3. Зависимость степени циркулярной поляризации излучения триплетного связанного экситона β от времени задержки t при возбуждении циркулярно поляризованным светом с $h\nu_{exc} = E_{FE}$; $B = 0$. Точки — экспериментальные данные, сплошные линии — расчетные зависимости; $T = 2$ К

но поляризованным. В отсутствие магнитного поля степень циркулярной поляризации излучения $P_{circ}(B, t)$ уменьшается со временем от $P_{circ}(0, t) \approx 0.2$ при $t = 0$ до $P_{circ}(0, t) \approx 0$ при $t = 1.5$ мкс (рис. 3). Скорость изменения степени поляризации минимальна при малых ($t < 0.3$ мкс) и больших ($t > 0.9$ мкс) временах задержки и максимальна в интервале 0.4 мкс $< t < 0.7$ мкс. Приложение поперечного магнитного поля при фиксированном t также приводит к деполаризации излучения (эффект Ханле) (рис. 4). Несмотря на нетривиальное поведение в поле компонент излучения $I_{\sigma^-}(B, t)$ и $I_{\sigma^+}(B, t)$ (см. рис. 2), экспериментальная зависимость степени поляризации от магнитного поля, $P_{circ}(B, t)$ при фиксированном t характеризуется монотонным спадом степени поляризации во всем интервале полей (рис. 4). Основные черты этой зависимости (в пределах точности эксперимента) сохраняются при различных t .

3. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Для объяснения наблюдаемой временной эволюции зависимостей $I_{\sigma^\mp}(B, t)$ и $P_{circ}(B, t)$ рассмотрим структуру энергетических уровней триплетных связанных экситонов в GaSe. В кристаллах GaSe орбитально-невырожденное состояние экситона, связанного на ионизованном центре (или изоэлектронной ловушке), как и основное состояние прямого свободного экситона, при учете обменного взаимодействия

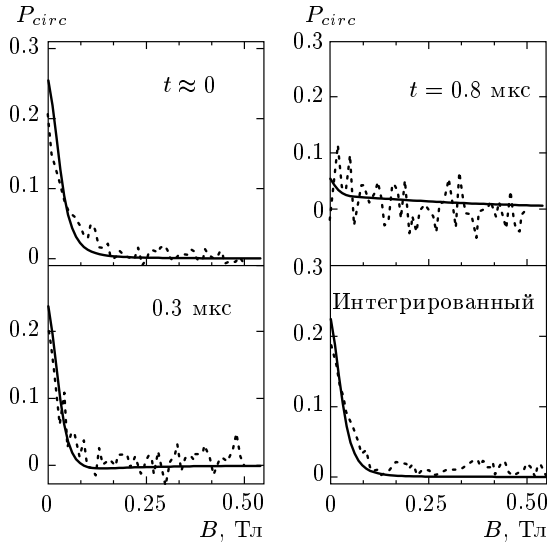


Рис. 4. Зависимости степени циркулярной поляризации излучения триплетного связанного экситона β от магнитного поля в различные моменты времени жизни t экситонов, а также степень поляризации интегрированного по времени излучения при возбуждении циркулярно поляризованным светом с $h\nu_{exc} = E_{FE}$. Время t указано на рисунке. Пунктирные линии — экспериментальные данные, сплошные линии — расчетные зависимости; $T = 2$ К

расщепляется на два состояния — синглетное и триплетное [9, 10]. Синглетные экситоны оптически активны в поляризации света $\mathbf{E} \parallel c$ и в условиях нашего эксперимента ($\mathbf{E} \perp c$) не проявляются. Триплетные экситоны характеризуются полным спином $S = 1$ и проекциями спина на ось $c \parallel z$: $S_z = 0, \pm 1$. При распространении света вдоль оптической оси кристалла переходы из состояний с $S_z = \pm 1$ разрешены в свете круговой поляризации σ^\pm , состояние с $S_z = 0$ оптически неактивно [10]. В силу анизотропии кристалла состояние с $S_z = 0$ отщеплено от состояний с $S_z = \pm 1$ на величину Δ [8, 10] (см. вставку на рис. 1).

Поперечное магнитное поле смешивает состояния $|\pm 1\rangle$ и $|0\rangle$. Магнитоиндуцированное смешивание состояний $|\pm 1\rangle$ и $|0\rangle$ приводит к «возгоранию» оптически неактивного состояния $|0\rangle$. В результате линия излучения (поглощения) экситона расщепляется в триплет. Энергии состояний триплетного экситона в поперечном магнитном поле $\mathbf{B} \parallel x \perp c$ определяются выражениями [11]

$$E_{1,2} = E_0 - 0.5 \left(\Delta \mp \sqrt{\Delta^2 + \Omega^2} \right), \quad E_3 = E_0, \quad (3)$$

где E_0 — энергия состояний $|\pm 1\rangle$ при $B = 0$,

$\Omega = g_\perp \mu_0 B$, $g_\perp \equiv g_{xx} = g_{yy}$ — поперечная компонента g -фактора экситона, μ_0 — магнетон Бора. Оптические переходы из состояний 1 и 2 разрешены в поляризации света $\mathbf{E} \parallel \mathbf{B}$, из состояния 3 — в поляризации $\mathbf{E} \perp \mathbf{B}$. Схема расщепления уровней энергии триплетного экситона в поперечном магнитном поле, описываемая соотношениями (3), показана на рис. 1 (вставка) сплошными линиями.

Рассмотренная модель поведения триплетного экситона в магнитном поле полностью подтверждается характером эффекта Зеемана на линиях α и β , наблюдаемого в полях $B > 2$ Тл [8]. Однако анализ экспериментальных данных показывает, что в области более слабых полей этой модели недостаточно и в эффективный гамильтониан триплетных экситонов в магнитном поле следует включить дополнительные слагаемые, описывающие локальное понижение симметрии системы под влиянием внутренних полей [12]. На наличие статического возмущения V , смешивающего различные спиновые состояния связанных экситонов, указывают наблюдения эффекта антипересечения спиновых подуровней триплетных связанных экситонов в магнитном поле [13–15], а также эксперименты по магнитному резонансу [16–19]. Возмущение спиновой структуры триплетного связанного экситона при $B = 0$ может быть обусловлено сверхтонким взаимодействием экситонного спина со спином ядер кристаллической решетки в области дефекта [13, 16–19]. В упрощенной форме это взаимодействие может быть учтено добавлением к гамильтониану триплетного экситона в магнитном поле [10] слагаемого

$$\hat{V} = \frac{1}{2} \left(\Omega'_x \hat{S}_x + \Omega'_y \hat{S}_y + \Omega'_z \hat{S}_z \right), \quad (4)$$

где \hat{S}_i — компоненты оператора экситонного спина $\hat{\mathbf{S}}$ ($S = 1$), величины Ω'_i ($i = x, y, z$) характеризуют возмущение энергетического спектра триплетного экситона в локальном эффективном магнитном поле [12]. Например, Ω'_z есть величина расщепления состояний экситона $|\pm 1\rangle$ в нулевом внешнем поле при $\Omega'_x = \Omega'_y = 0$. Среднее значение локального эффективного магнитного поля в системе связанных экситонов (среднее по ансамблю) естественно принять равным нулю, поскольку макроскопический магнитный момент кристалла при $B = 0$ отсутствует.

В отсутствие внешних полей возмущение V формирует в кристалле вместо состояний $|\pm 1\rangle$ и $|0\rangle$ новые состояния a, b и c , представляющие собой суперпозицию исходных состояний. Степень смешивания исходных состояний зависит от матричных элемен-

тов $V_{mn} = \langle m|V|n\rangle$, $m, n = | +1\rangle, | -1\rangle, 0$. Волновые функции $\Psi_{a,b,c}$ состояний a, b и c в магнитном поле могут быть записаны в виде

$$\Psi_k = C_{1k}(B)|-1\rangle + C_{2k}(B)|+1\rangle + C_{3k}(B)|0\rangle, \quad (5)$$

$$k = a, b, c.$$

Энергии состояний a, b и c во внешнем магнитном поле (рис. 1, вставка), а также значения коэффициентов $C_{ik}(B)$ могут быть вычислены методом теории возмущений. Доли оптически активных состояний $|\pm 1\rangle$ в волновых функциях (5) определяют оптическую активность состояний a, b и c в свете σ^\pm -поляризации, а также излучательные $\tau_{ir}(B) = [C_{1i}^2(B) + C_{2i}^2(B)]^{-1}\tau_r$ и полные $\tau_i(B) = [\tau_{ir}^{-1}(B) + \tau_0^{-1}]^{-1}$ времена жизни экситонов в этих состояниях (здесь $i = a, b, c$, τ_r — излучательное время жизни состояний $|\pm 1\rangle$, τ_0 — безызлучательное время жизни экситонов).

Строго говоря, в условиях резонансного возбуждения светом возбуждается когерентная суперпозиция состояний a, b и c и величины $I_{\sigma^\mp}(B, t)$ определяются суммой сигналов пересечения и антипересечения соответствующих подуровней [2]. Сигнал пересечения, который может быть вызван интерференцией состояний a, b, c , максимален в области наибольшего сближения соответствующих уровней, определяемого в рассматриваемом случае расщеплением уровней a и b в нулевом магнитном поле, $E_a - E_b \equiv \hbar\omega_{ab} > 0.001$ мэВ [12] (с увеличением поля расщепление уровней a, b, c только увеличивается (см. вставку на рис. 1)). При ширине импульса ворот $\Delta t \approx 30$ нс величина $\omega_{ab}\Delta t \gg 1$. Таким образом, за время Δt когерентность состояний a, b, c успевает практически распасться ($\Delta t < \tau_a(B), \tau_b(B), \tau_c(B)$ [12]), так что вкладом эффекта пересечения уровней в интенсивность $I_{\sigma^\mp}(B, t)$ можно пренебречь. В этом случае рассматриваемые магнитооптические эффекты можно описать в модели антипересечения уровней a, b, c (в нулевом магнитном поле), не прибегая к формализму матрицы плотности. (Статическим возмущением, препятствующим вырождению (пересечению) зеемановских подуровней связанных экситонов в нулевом внешнем поле, является в данном случае локальное поле V , см. вставку на рис. 1.)

При резонансном возбуждении экситонов циркулярно поляризованным светом (σ^+) вероятность рождения экситонов в состояниях a, b, c равна $C_{1i}^2(B)\tau_r^{-1}$ ($i = a, b, c$). В нашем эксперименте связанные экситоны α и β образуются в результате захвата ионизованными центрами рожденных светом сво-

бодных триплетных экситонов, спиновое состояние которых в значительной степени сохраняется в процессе захвата [8]. Мы рассмотрим более общий случай, предполагая, что при захвате свободного триплетного экситона, находящегося в определенном зеемановском состоянии, он с вероятностью γ переходит в идентичное зеемановское состояние связанного экситона и с вероятностью $(1 - \gamma)/2$ в два других. При возбуждении экситонов короткими импульсами света ($\tau_p \ll \tau_{a,b,c}$), поляризованного по правому кругу, интенсивности излучения связанных экситонов в i -м зеемановском состоянии ($i = a, b, c$) в пренебрежении спиновой релаксацией экситонов можно записать в виде

$$I_{\sigma^-}^i(B, t) \propto n_{0i}(B)C_{1i}^2(B)\tau_r^{-1} \exp[-t/\tau_i(B)],$$

$$I_{\sigma^+}^i(B, t) \propto n_{0i}(B)C_{2i}^2(B)\tau_r^{-1} \exp[-t/\tau_i(B)], \quad (6)$$

где $n_{0i}(B)$ — начальная заселенность i -го состояния (при $t = 0$), зависящая от интенсивности накачки. Поскольку оптические переходы из состояний a, b и c при $B < 1$ Тл спектрально не разрешаются, экспериментально наблюдается суммарное излучение

$$I_{\sigma^-}(B, t) = \sum_i I_{\sigma^-}^i(B, t),$$

$$I_{\sigma^+}(B, t) = \sum_i I_{\sigma^+}^i(B, t), \quad i = a, b, c. \quad (7)$$

Расчетные зависимости $I_{\sigma^-}(B, t)$, $I_{\sigma^+}(B, t)$ и $P_{circ}(B, t)$ в различные моменты времени t изображены на рис. 2–4 сплошными линиями. Теоретические кривые на рис. 2–4 получены при значениях параметров $g_\perp = 3.7$ [8], $\tau_r = 0.1$ мкс [12, 15], $\tau_0 = 7$ мкс [12, 15], $\Delta = 0.038$ мэВ [15], $|V_{-1-1}| = |V_{+1+1}| = 0.0005$ мэВ, $|V_{0-1}| = |V_{0+1}| = 0.0027$ мэВ [12, 15], $|V_{+1-1}| = 0$, $\gamma = 0.48$. С учетом конечной ширины $\Delta t \approx 30$ нс импульса ворот для более корректного сравнения с экспериментальными данными на рис. 2–4 приведены средние значения величин $I_{\sigma^\pm}(B, t)$ за промежутки времени от t до $t + \Delta t$. Сравнение теоретических и экспериментальных зависимостей показывает, что предложенная модель дает хорошее качественное и достаточно хорошее количественное описание поведения величин $I_{\sigma^\pm}(B, t)$ и $P_{circ}(B, t)$ в различные моменты жизни экситонов. Как отмечалось выше, расчет теоретических зависимостей выполнен в предположении, что возмущение V обусловлено локальным магнитным полем (ассоциируемым с эффективным сверхтонким магнитным полем \mathbf{B}_N), при этом полученные результаты усреднены в соответствии с условием, что среднее по ансамблю связанных экситонов

значение V_{mn} равно нулю (т. е. среднее значение \mathbf{B}_N для системы связанных экситонов, $\langle \mathbf{B}_N \rangle = 0$). Влияние возмущения V на энергии зеемановских подуровней связанных экситонов в магнитном поле показано пунктирными линиями на рис. 1 (вставка). Расчет показывает, что смещения подуровней вследствие возмущения V заметно превышают естественную ширину соответствующих спектральных линий, но гораздо меньше их неоднородной ширины. Тем не менее в рамках модели это влияние существенно, поскольку снимает вырождение экситонных состояний при $B = 0$ (см. вставку на рис. 1).

Заметная анизотропия матричных элементов $|V_{ik}|$ в случае сверхтонкого взаимодействия экситонного спина со спином ядер кристаллической решетки в области дефекта ранее наблюдалась для триплетных связанных экситонов в фосфиде галлия [19]. Авторы работы [19] связывают это явление с особенностями взаимодействия ядер дефекта со связанным экситоном с большой энергией связи в низкосимметричном центре. Хотя энергия связи экситона β на дефекте относительно велика (близка к энергии связи свободного экситона в GaSe, равной 20 мэВ), для понимания причин полученной в нашем случае анизотропии $|V_{ik}|$ требуется более детальная информация о структуре дефекта. Отметим также, что смешивание состояний $|\pm 1\rangle$ и $|0\rangle$, приводящее к расщеплению различных спиновых состояний триплетных связанных экситонов при $B = 0$ (подобно показанному на рис. 1 пунктирной линией) может индуцироваться и локальным электрическим полем [12].

Возможность смешивания различных спиновых состояний триплетных связанных экситонов локальным электрическим полем связана с его действием на координатные части волновых функций $|\pm 1\rangle$ и $|0\rangle$, которые различны. Это различие наглядно проявляется, в частности, в различии правил отбора для оптических переходов из состояний $|\pm 1\rangle$ и $|0\rangle$. Однако возмущение исходной спиновой структуры триплетного связанного экситона только локальным электрическим полем не позволяет объяснить в рамках используемой модели существование циркулярной поляризации экситонного излучения (в условиях циркулярно поляризованной накачки) при $B = 0$. Формально это связано с тем, что состояния $|+1\rangle$ и $|-1\rangle$ входят в формируемые электрическим полем состояния a, b, c с равными весами. Это не так при выборе V в форме (4), причем наиболее существенным в этом отношении является наличие в выражении (4) последнего слагаемого $\Omega'_z \hat{S}_z$ (определяюще-

го величины $|V_{-1-1}|, |V_{+1+1}|$)¹⁾. Однако модель не исключает вклад локального электрического поля в смешивание состояний $|\pm 1\rangle$ и $|0\rangle$. Возможно именно локальное электрическое поле наряду с анизотропным сверхтонким взаимодействием ответственно за анизотропный характер V , проявляющийся в различии величин $|V_{0\pm 1}|$ и $|V_{\pm 1\pm 1}|$.

Интенсивности σ^- - и σ^+ -компонент излучения, наблюдаемых в условиях непрерывного возбуждения люминесценции, определяются соотношением (2). На рис. 4 приведены результаты экспериментального измерения зависимости степени циркулярной поляризации интегрального (по времени) излучения связанных экситонов при резонансном возбуждении светом σ^+ -поляризации от магнитного поля, $P_{circ}(B)$, и ее аппроксимация соотношением (1) с учетом (7) и (2). Как видно из рис. 4, и в этом случае наблюдается хорошее согласие теории и эксперимента.

Экспериментально наблюдаемые особенности поведения поляризованной магнитолюминесценции связанных экситонов допускают в рамках рассмотренной модели простое качественное объяснение. При $B = 0$ одно из состояний, a или b , является почти «чистым» состоянием $|-1\rangle$, другое — состоянием $|+1\rangle$; состояние c практически совпадает с безызлучательным состоянием $|0\rangle$, вклад состояний $|\pm 1\rangle$ в волновую функцию этого состояния при $B = 0$ мал. В силу оптических правил отбора для экситонных переходов возбуждение кристалла циркулярно поляризованным светом приводит к преимущественному заселению состояния с наибольшей долей состояния $|-1\rangle$ или $|+1\rangle$ (в зависимости от знака поляризации), например a , вследствие чего в системе связанных экситонов возникает отличный от нуля макроскопический момент («оптическая ориентация экситонов»). Вследствие доминирующего вклада наиболее заселенного состояния a в люминесценцию связанных экситонов, их излучение будет также преимущественно циркулярно поляризовано, что и наблюдается в эксперименте.

Как показано выше, степень циркулярной поляризации экситонного излучения при $B = 0$, $P_{circ}(0, t)$, падает с течением времени. Этот эффект в значительной степени связан с различными временами жизни излучающих состояний a, b, c . Состоя-

¹⁾ Отметим, что впервые предположение о наличии продольной составляющей локального эффективного магнитного поля, действующего на связанные экситоны α и β , было выдвинуто в работе [8] с целью объяснить отсутствие при $B = 0$ эффекта оптического выстраивания экситонов α и β при их возбуждении линейно поляризованным светом.

ния a и b , основной вклад в формирование которых при $B = 0$ вносят оптически активные состояния $|\pm 1\rangle$, характеризуются существенно меньшими временами жизни, чем состояние c : $\tau_{a,b}(0) \ll \tau_c(0)$ (напомним, что $\tau_r \ll \tau_0$). Поэтому с течением времени в излучении связанных экситонов начинает доминировать вклад наиболее долгоживущего (хотя оптически и наименее активного) состояния c , в волновой функции которого состояния $|-1\rangle$ и $|+1\rangle$ представлены практически с равным весом.

Таким образом, уменьшение $P_{circ}(0, t)$ с увеличением t объясняется увеличением относительного вклада в $I_{\sigma\pm}(B, t)$ излучения из состояния c , которое происходит с практически равной вероятностью в обеих поляризациях, σ^- и σ^+ . Теоретическая зависимость $P_{circ}(0, t)$ приведена выше на рис. 4. Как видно из рисунка, она находится в хорошем качественном согласии с экспериментом. Отметим, что в рамках используемой модели деполяризация экситонного излучения в нулевом магнитном поле происходит даже без участия процессов спин-решеточной релаксации в системе экситонов и фактически вызвана локальным полем V .

В свою очередь, деполяризация излучения ориентированных связанных экситонов в магнитном поле при фиксированном t обусловлена дополнительным (по отношению к локальному полю V) магнитоиндуцированным смешиванием исходных состояний $|\pm 1\rangle$ и $|0\rangle$. По мере увеличения B относительные вклады состояний $|-1\rangle$ и $|+1\rangle$ в волновые функции состояний a и b сравниваются (для состояния c эти вклады практически одинаковы во всем интервале изменений магнитного поля), так что при больших B излучение из всех трех состояний с равной вероятностью происходит в свете σ^- - и σ^+ -поляризаций²⁾. Магнитоиндуцированное смешивание состояний $|\pm 1\rangle$ и $|0\rangle$ приводит также к возгоранию долгоживущего состояния c и, как следствие, к увеличению в магнитном поле полной интенсивности I_{Σ} излучения связанных экситонов, $I_{\Sigma} = I_{\sigma^-}(B, t) + I_{\sigma^+}(B, t)$ (см., например, рис. 2, $t = 0.3$ мкс).

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, исследование эффекта деполяризации экситонного излучения кристалла GaSe в поперечном поле в условиях резонансного возбуждения циркулярно поляризованным светом

²⁾ В сильных полях собственными поляризациями среды являются поляризации света $\mathbf{E} \parallel \mathbf{B}$ и $\mathbf{E} \perp \mathbf{B}$ (см. вставку на рис. 1).

показало, что зависимости интенсивностей σ^- - и σ^+ -компонент излучения от магнитного поля в различные моменты жизни возбужденного состояния, $I_{\sigma\pm}(B, t)$, различны и отличаются от аналогичных зависимостей, полученных в условиях, соответствующих стационарному возбуждению. Установлено, что, несмотря на значительную эволюцию вида исследованных зависимостей $I_{\sigma\pm}(B, t)$ с течением времени, зависимости степени циркулярной поляризации излучения ориентированных экситонов от магнитного поля, $P_{circ}(B, t)$, качественно подобны для различных t . Предложено теоретическое описание исследованных магнитооптических эффектов, в том числе, эффекта деполяризации излучения ориентированных экситонов в магнитном поле (эффекта Ханле) в модели антипересечения спиновых подуровней связанных экситонов в нулевом магнитном поле.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (грант № 07-02-01375).

ЛИТЕРАТУРА

1. Л. Н. Новиков, Г. В. Скороцкий, Г. И. Соломахо, УФН **113**, 597 (1974).
2. Е. Б. Александров, Г. И. Хвостенко, М. П. Чайка, *Интерференция атомных состояний*, Наука, Москва (1991).
3. R. Planel, Sol. St. Electron. **21**, 1437 (1978).
4. *Excitons*, ed. by E. I. Rashba and M. D. Sturge, North-Holland, Amsterdam (1982).
5. E. L. Ivchenko and G. E. Pikus, *Superlattices and Other Heterostructures: Symmetry and Optical Phenomena*, Springer-Verlag (1995).
6. Y. Masumoto, S. Oguchi, B. Pal, and M. Ikezawa, Phys. Rev. B **74**, 205332 (2006).
7. S. V. Andreev, B. R. Namozev, A. V. Koudinov et al., Phys. Rev. B **80**, 113301 (2009).
8. Е. М. Гамарц, Е. Л. Ивченко, Г. Е. Пикус и др., ФТТ **24**, 2325 (1982).
9. E. Mooser and M. Schlüter, Nuovo Cim. B **18**, 164 (1973).
10. Е. Л. Ивченко, Г. Е. Пикус, Б. С. Разбирин, А. Н. Старухин, ЖЭТФ **72**, 2230 (1977).
11. Е. М. Гамарц, Е. Л. Ивченко, Г. Е. Пикус и др., ФТТ **22**, 3620 (1980).

12. A. N. Starukhin, D. K. Nelson, B. S. Razbirin, and E. L. Ivchenko, *Phys. Rev. B* **72**, 045206 (2005).
13. W. M. Chen, M. Godlewski, B. Monemar, and J. P. Bergman, *Phys. Rev. B* **41**, 5746 (1990).
14. Mt. Wagner, I. A. Buyanova, N. Q. Thinh et al., *Phys. Rev. B* **62**, 16572 (2000).
15. A. N. Starukhin, D. K. Nelson, and B. S. Razbirin, *Phys. Rev. B* **65**, 193204 (2002).
16. E. Sorman, W. M. Chen, A. Henry et al., *Phys. Rev. B* **51**, 2132 (1995).
17. A. M. Frens, M. T. Bennebroek, J. Schmidt et al., *Phys. Rev. B* **46**, 12316 (1992).
18. W. M. Chen and B. Monemar, *Phys. Rev. B* **40**, 1365 (1989).
19. W. M. Chen, B. Monemar, and M. Godlewski, *Phys. Rev. B* **37**, 2564 (1988).